

연속추출을 이용한 방사능 토양 중 Co 및 Cs의 결합형태 조사

이정준, 김계남, 문제권, 이근우

한국원자력연구원, 대전광역시 유성구 대덕대로 1045

ijilee@kaeri.re.kr

원자력시설에서 보관중인 방사능 토양의 제염처리는, 저장고의 저장용량 증대 및 방폐장 처분비용의 절감 효과로 그 필요성이 대두되고 있다. 그러나, 각 시설에서 보관중인 방사능 토양의 경우, 오염된 시점에서 상당히 많은 시간동안 보관되어 왔기 때문에, 실험실에서 모사오염토양을 대상으로 확립한 제염처리기술을 직접 적용하기에는 한계가 있을 것으로 판단된다.

먼저, 방사능 토양을 대상으로 체분리를 실시하여 입도분포를 파악하였고, 입경별 토양을 대상으로 MCA를 이용하여 방사능 분포를 조사하였다. Table 1에 도시한 것과 같이, 실험에 이용된 방사능 토양의 경우 전체입경의 방사능이 약 1,747Bq/kg으로 나타났지만, 체분리 후 입도별 방사능 분포는 토양입경에 따라 큰 차이를 보이는 것으로 나타났다. 즉, 2.0mm이상 토양의 경우, 343Bq/kg으로 전체입경의 방사능에 비해 5배 정도 낮고, 0.075mm이하 미세토양의 경우, 4,960Bq/kg으로 전체입경의 방사능에 비해 약 3배 정도 높은 것으로 나타났으며, 2.0mm이상 토양에 비해서는 약 14배 높은 것으로 조사되었다. 이는 방사능 핵종인 Co 및 Cs이 대부분 미세토양에 결합되어 있는 것을 의미한다.

또한, 방사능 토양의 주요 핵종인 Co 및 Cs은, 장기간의 보관에 따른 aging효과로 토양내에서 다양한 결합 형태를 가질 것으로 예상된다. 따라서, 연속추출방법을 이용하여 방사능 토양을 대상으로 Co 및 Cs의 결합형태를 조사하였다. 연속추출방법은 토양내 중금속의 결합형태를 조사하기 위해서 Tessier et al.(1979)에 의해 고안된 방법이 이용되고 있으며, 결합형태의 종류는 교환성, 탄산염형태, Fe 또는 Mn 결합형태, S 또는 유기물 결합형태, 잔류성 형태로 나누어진다. 교환성 형태로 존재하는 경우는 토양 입자 표면에 흡착되어 강우 등에 의해 쉽게 용출 가능하며, 탄산염과 결합된 형태는 약산성의 조건에서 용출 및 이동이 가능하다. 나머지 세 개의 fraction은 상대적으로 이동성이 낮은데, Fe 또는 Mn 결합형태의 경우 환원성 환경에서 용출 및 이동이 가능하고, S 또는 유기물 결합형태는 산화성 환경에서 유기물이 분해될 때 용출 및 이동이 가능하며, residual fraction은 광물 격자 내에 강하게 결합되어 자연환경에서의 이동가능성이 매우 낮다(이종환외, 2007). 단계별 추출과정을 통해 토양 내 금속이온을 용출시켜 그 농도를 측정함으로써 각 결합형태의 상대적 조성을 구하게 된다.

Table 2에 연속추출방법에 대해 상세하게 나타내었다. 본 연구에서는 방사능 토양을 대상으로 하기 때문에, 동일한 토양 5개를 준비하여 단계별로 추출시킨 후, 각 단계에서 고액분리 후 토양을 건조시켜, MCA로 방사능을 측정하여 Co 및 Cs의 상대적 조성을 조사하였다. 그 결과, 장기간 보관되어온 방사능 토양에 있어서, Co의 경우 12.5%가 residual 형태로, Cs의 경우 54.8%가 residual의 형태로 존재하는 것으로 조사되었다(Fig. 1). 따라서, HCl과 같은 무기산을 이용한 pH 1의 강산성 환경에서의 토양 제염에 있어(이정준외, 2008), Co의 경우 대부분 제거가 가능하지만, Cs의 경우 토양입자의 미세공극에 결합되어 있어 제염이 어려울 것으로 여겨진다. 이와 같이 장기간 보관되어져 온 토양을 제염하기 위해서는 연속추출과 같은 핵종의 토양 내 결합형태를 파악함으로써 적합한 제염기술의 선택이 필요할 것으로 판단된다.

Table 1. Radioactivity distribution on soil particle size

Soil size (mm)	Co (Bq/kg)	Cs (Bq/kg)	Sum (Bq/kg)
whole size	697	1050	1747
d>2.0	107	236	343
0.425-2.0	619	998	1617
0.075-0.425	1360	2000	3360
d<0.075	2950	2010	4960

Table 2. Description on sequential extraction method

Fraction Symbol	Phase	Method				
		L/S	Conc. (M)	Reagent	Shaking, time & temp.	Memo
Fr. 1	Exchangeable	8	1	MgCl ₂	Shaking for 1h	pH7 with HNO ₃ or KOH
Fr. 2	Bound to carbonate	8	1	CH ₃ COONa	Shaking for 5h	pH5 with CH ₃ COOH
Fr. 3	Bound to Fe and Mn oxides (Reducing step)	20	0.04	NH ₂ OH HCl in 25% CH ₃ COOH	Shaking for 6h at 96±3°C	
Fr. 4	Bound to S and organics (Oxidizing step)	3	0.02	HNO ₃	Occasional agitating for 2h at 85±2°C	pH2 with HNO ₃
		5	30%	H ₂ O ₂		
		3	30%	H ₂ O ₂	Shaking for 3h at 85±2°C, Cooling	
		5	3.2	CH ₃ COONH ₄ in 20% HNO ₃	Shaking 0.5h	
Fr. 5	Residual	1~2	4	HNO ₃		with conc. HCl

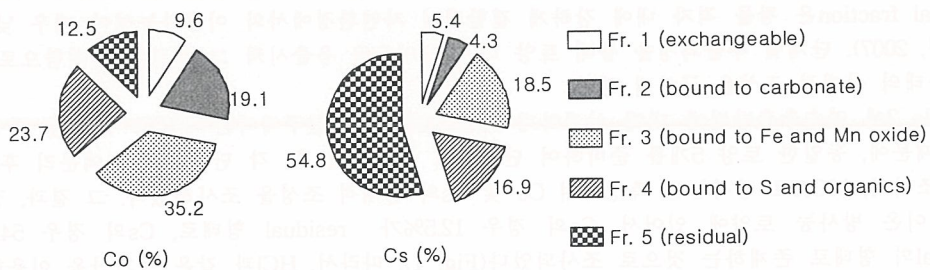


Figure 1. Results of sequential extraction for soil used in this study (d<0.075mm)

References

1. Tessier et al., Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals, Analytical Chemistry, Vol. 51, No. 7, pp.844-850 (1979)
2. 이종환 외, 산업폐기물로부터 중금속의 단순 용출과 연속추출, 한국폐기물학회지, Vol. 24, No. 2, pp. 116-124 (2007)
3. 이정준 외, 퇴적침출(Heap leaching)을 이용한 토양 중 Co 및 Cs의 제염, 한국방사성폐기물학회 2008년도 춘계발표회, pp.51-52 (2008)